




PRODUCTION OF HEATING TYPE PAVEMENT MATERIAL HAVING EXCELLENT PEELING-PREVENTIVE PROPERTY

Patent number: JP2001002928
Publication date: 2001-01-09
Inventor: ANDO SEITARO; GOTO TADAO; HAGIWARA SADAO;
 MIYAUCHI HARUYOSHI
Applicant: TOHO CHEM IND CO LTD
Classification:
 - **international:** C08L95/00; C08K5/20
 - **european:**
Application number: JP19990214103 19990624
Priority number(s):

Also published as:

 E P1063263 (A2)
 US 6281273 (B1)
 E P1063263 (A3)

Abstract of JP2001002928

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a heating type pavement material which can have an excellent peeling-preventing property between a bituminous material and aggregates, by adding a composition comprising a specific condensation product and a specified modified polyolefin resin in a specific ratio in a specific amount based on the bituminous material.

SOLUTION: This method for producing a heating type pavement material comprises compounding various kinds of aggregates as a base material with a bituminous material, etc. Therein, a composition comprising (A) a condensation product obtained by reacting (i) 1 mole of a polyalkylenepolyamine of the formula [(m) is 2 or 3; and (n) is 1 to 8] (for example, pentaethylenhexamine) with (ii) 1 mole to (n+1) moles of a 8-22C saturated or unsaturated fatty acid (for example, oleic acid) and (B) a modified polyolefin resin having carboxyl groups and an acid value of 5 to 100 (for example, oxidized polyethylene wax) in a component A:B weight ratio of 95:5 to 5:95 is added to the pavement material in an amount of 0.05 to 5.0 wt.% based on the bituminous material.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-2928

(P2001-2928A)

(43) 公開日 平成13年1月9日 (2001.1.9)

(51) Int.Cl.⁷

識別記号

F I

テームコード* (参考)

C 0 8 L 95/00

C 0 8 L 95/00

4 J 0 0 2

C 0 8 K 5/20

C 0 8 K 5/20

// (C 0 8 L 95/00

23:00)

審査請求 未請求 請求項の数 1 書面 (全 6 頁)

(21) 出願番号

特願平11-214103

(22) 出願日

平成11年6月24日 (1999.6.24)

(71) 出願人 000221797

東邦化学工業株式会社

東京都中央区明石町6番4号

(72) 発明者 安藤 征太郎

東京都杉並区浜田山4-15-5

(72) 発明者 後藤 忠夫

千葉県千葉市稲毛区宮野木町1150

(72) 発明者 萩原 貞夫

千葉県千葉市美浜区高洲2-6-14-106

(72) 発明者 宮内 治義

千葉県四街道市四街道1549-11-308

Fターム (参考) 4J002 AG001 BB082 BB092 BB142

BB252 EP016 EP026 GL00

(54) 【発明の名称】 剥離防止性に優れた加熱型舗装材料の製造方法

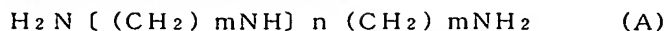
(57) 【要約】

【課題】 瀝青質と骨材との間の剥離防止効果に優れた加熱型舗装材料の製造方法を確立すること。

【解決手段】 基材として各種骨材と瀝青質等から成る加熱型舗装材料を製造するに際して、ポリアルキレンポリアミンと脂肪酸とを反応させて得られる特定の縮合物とカルボキシル基を有する変性ポリオレフィン樹脂とを特定の割合で配合した組成物を瀝青質に対し0.05～5.0重量%添加する。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 基材として各種骨材と瀝青質等から成る加 *



(但し、 m は 2 又は 3 の整数、 n は 1～8 の整数を表す) で表されるポリアルキレンポリアミン 1 モルと、炭素数 8～22 の飽和もしくは不飽和脂肪酸 1 モル～($n+1$) モルとを反応させて得られる縮合物 (B) と酸価 5～100 のカルボキシル基を有する変性ポリオレフィン樹脂 (C) とを (B) : (C) = 95 : 5～5 : 95 (重量%) の割合で配合した組成物を瀝青質に対し 0.05～5.0 重量% 添加することを特徴とする剥離防止性に優れた加熱型舗装材料を製造する方法。

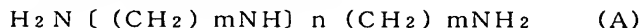
【発明の詳細な説明】

【0001】

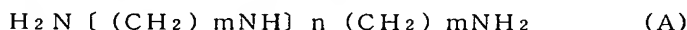
【発明の属する技術分野】 本発明は加熱型舗装材料に関し、特に骨材と瀝青質との間に優れた剥離防止性を付与できる加熱型舗装材料の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 従来からアスファルト、タール、ピッチ等の瀝青質は各種骨材と配合され道路舗装材料、防水材料に使用されている。しかし、これらの瀝青質は骨材との親和性がなく、瀝青質が骨材から剥離し易い性質を有しており、雨水等の水の作用によって瀝青質が剥離するという現象が生じる。この現象は更に運搬用車両の大型化等にも伴い、アスファルト舗装等の道路舗装材の耐久 *



(但し、 m は 2 又は 3 の整数、 n は 1～8 の整数を表す) で表されるポリアルキレンポリアミン 1 モルと、炭素数 8～22 の飽和もしくは不飽和脂肪酸 1 モル～($n+1$) モルとを反応させて得られる縮合物 (B) と酸価 5～100 のカルボキシル基を有する変性ポリオレフィン樹脂 (C) を (B) : (C) = 95 : 5～5 : 95 ★



で表されるポリアルキレンポリアミンは、 n が 1 から 8 の範囲であることが必須で、例示するとジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミン、オクタエチレンノナミン等のポリエチレンポリアミンやジプロピレントリアミン、トリプロピレンテトラミン、テトラプロピレンペンタミン、ペンタプロピレンヘキサミン等を挙げることができるが、 n が 4～6 を有することが効果の点で最も好ましい。

【0006】 前記ポリアルキレンポリアミンと反応させる炭素数 8～22 の飽和もしくは不飽和脂肪酸としてはカプリン酸、椰子脂肪酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、ベヘニン酸、オレイン酸、リノール酸、トール油脂肪酸等いずれでも効果的であるが、炭素数が 16～18 のパルミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸、リノール酸等の飽和もしくは不飽和脂肪酸であることが効果の点で最も好ましい。

* 熱型舗装材料を製造するに際して、下記一般式 (A)

※性に悪影響を及ぼしている。このような問題を解決するため、例えば特公昭 55-38993 号公報では瀝青質にアルキルヒドロキシアミンを主成分とする化合物を添加する方法、特公昭 55-38995 号公報では高級脂肪酸ポリアミン及びその誘導体を使用する方法、また特公昭 57-51745 号公報ではシラン化合物を添加する方法等が提案されている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 しかし、従来提案された方法はいずれも効果の面で不十分であり、未だ実用的に満足できる骨材との剥離防止性に優れた瀝青質が得られていないのが現状である。従って本発明は剥離防止性に優れた加熱型アスファルト舗装材料の製造方法を確立することが課題である。

【0004】

【課題を解決するための手段】 本発明者らは上記課題を解決するために鋭意研究した結果、瀝青質と骨材との剥離防止効果に極めて優れた添加剤を見出し本発明に到達したものである。即ち本発明は、基材として各種骨材と瀝青質等から成る加熱型舗装材料を製造するに際して、下記一般式 (A)

★ (重量%) の割合で配合した組成物を、瀝青質に対し 0.05～5.0 重量% 添加することを特徴とする剥離防止性に優れた加熱型舗装材料を製造する方法を提供するものである。以下本発明を詳細に説明する。

【0005】 本発明において、前記一般式 (A)

【0007】 また前記ポリアルキレンポリアミン 1 モルに対して、炭素数 8～22 の飽和もしくは不飽和脂肪酸を 1 モル～($n+1$) モルの範囲で反応させるが、ポリアルキレンポリアミンの n が 1～3 である場合はポリアルキレンポリアミン 1 モルに対して脂肪酸を 1～2 モル、 n が 4～6 である場合はポリアルキレンポリアミン 1 モルに対して脂肪酸を 2～3 モル、 n が 7～8 である場合はポリアルキレンポリアミン 1 モルに対して脂肪酸を 2～4 モル反応させることが効果的である。

【0008】 また本発明に使用される酸価 5～100 のカルボキシル基を有する変性ポリオレフィン樹脂としては、酸化ポリエチレンワックス、酸化ポリプロピレンワックス、エチレン-アクリル酸共重合体、エチレン-メタクリル酸共重合体、エチレン-（無水）マレイン酸共重合体、プロピレン-（無水）マレイン酸共重合体、エチレン-（無水）イタコン酸共重合体及びこれらの 2 種以上の混合物等を例示できるが、いずれも酸価が 5～1

3

00mg KOH/g の範囲であることが必須条件であり、特に酸価が 20~50mg KOH/g であることが剥離防止効果の点で好ましいし、且つ変性ポリオレフィン樹脂が酸化ポリエチレンワックスおよび酸化ポリプロピレンワックスであることが最も好ましい。

【0009】更に本発明に係わる組成物である、前記ポリアルキレンポリアミン 1 モルと炭素数 8~22 の飽和もしくは不飽和脂肪酸 1 モル~(n+1) モルとを反応させて得られる縮合物 (B) と酸価 5~100 のカルボキシル基を有する変性ポリオレフィン樹脂 (C) との配合割合は (B) : (C) = 95 : 5~5 : 95 (重量%) の範囲であることが必須であるが、(B) : (C) = 80 : 20~40 : 60 (重量%) の配合割合であることが特に効果的である。

【0010】本発明に係わる組成物は、まず前記ポリアルキレンポリアミンと高級脂肪酸とを苛性ソーダ又は苛性カリ等のアルカリ触媒下、公知の方法で縮合反応 (脱水反応) をさせポリアルキレンポリアミン脂肪酸アミド、または更にアルキル/アルケニルイミダゾリン化合物まで縮合させた化合物を得た後、カルボキシル基を有する変性ポリオレフィン樹脂と加熱下混合すること等により容易に得ることができる。

【0011】かくして得られた本発明に使用される組成物は、瀝青質と骨材との間に極めて優れた剥離防止性を与えることが可能である。即ち本発明の趣旨とするところは、前記本発明に係わる特定の縮合物 (B) と酸価 5~100 のカルボキシル基を有する変性ポリオレフィン樹脂 (C) とを特定の割合で配合して使用することであり、本発明の根幹をなすものである。従来このような提案はされておらず極めて重大な発見と言える。本発明に使用される組成物が骨材と瀝青質との間の剥離防止効果に優れる理由は理論的に完全に解明していないが、前記本発明に係わる縮合物 (B) の塩基性アミノ基と変性ポリオレフィン樹脂 (C) の酸性カルボキシル基との間のイオンの結合と、骨材表面のイオン性が複雑に作用し合って効果を発揮しているものと類推している。

4

【0012】本発明に係わる組成物の加熱瀝青質に対する添加量は 0.05~5.0 重量% であるが、好ましくは 0.3~3.0 重量% である。5.0 重量% を越える使用は効果的には変わらないが経済的に不利となる。

【0013】また、本発明に係わる組成物の瀝青質への添加 (混合) 方法は、例えば 100~250℃ に加熱溶解したアスファルト類に攪拌しながら添加するとか、また改質瀝青質を使用する場合は予め改質瀝青質を製造しておき、後本発明の組成物を添加する等の方法でもよい。

【0014】次に本発明を実施例により説明するが、本発明はその趣旨を越えない限り以下の実施例に限定されるものではない。

【0015】

【実施例】〈本発明の組成物の合成例〉

1. 本発明の組成物 (1) の合成

四つ口フラスコにオレイン酸 560g (2 モル) とペンタエチレンヘキサミン 241g (1 モル) を仕込み、窒素ガスを導入しながら徐々に昇温し、180℃ で 3 時間脱水反応を行いペンタエチレンヘキサミンのジオレイン酸アミドを得た。次に 240℃ まで昇温し、同温度で 5 時間脱水反応を行いイミダゾリン化合物であるジーヘプタデセニルイミダゾリン化合物を合成した。次いで、得られたジーヘプタデセニルイミダゾリン化合物 50 重量% に対し酸化ポリエチレンワックス (軟化点 130℃、酸価 30、分子量 4,000) 50 重量% を加え 160℃ で 30 分混合し冷却後、淡黄褐色フレーク状の本発明の組成物 (1) を得た。

【0016】2. 本発明の組成物 (2) ~ 本発明の組成物 (8) の合成

前記本発明の組成物 (1) の合成例に準じ、表 1 に記載した本発明に係わる本発明の組成物 (2) ~ 本発明の組成物 (8) を作製した。

【0017】

【表 1】

本発明の組成物(2)～本発明の組成物(8)

1. 本発明の組成物(2) ジエチレントリアミン(1モル)とオレイン酸(1モル)との反応により得られたモノアミド化合物60重量%と酸化ポリエチレンワックス(分子量2,500、軟化点120℃、酸価9)40重量%の組成物
2. 本発明の組成物(3) トリプロピレンテトラミン(1モル)とラウリン酸(2モル)との反応により得られたジアミド化合物70重量%と酸化ポリエチレンワックス(分子量3,000、軟化点100℃、酸価20)30重量%の組成物
3. 本発明の組成物(4) ペンタエチレンヘキサミン(1モル)とオレイン酸(2モル)との反応により得られたジアミド化合物80重量%と酸化ポリエチレンワックス(分子量3,000、軟化点135℃、酸価45)20重量%の組成物
4. 本発明の組成物(5) テトラエチレンペンタミン(1モル)とステアリン酸(2モル)との反応により得られたジイミダゾリン化合物95重量%と酸化ポリプロピレンワックス(分子量3,800、軟化点125℃、酸価20)5重量%の組成物
5. 本発明の組成物(6) ジエチレントリアミン(1モル)とオレイン酸(1モル)との反応により得られたイミダゾリン化合物40重量%とエチレン-アクリル酸共重合体(分子量2,500、軟化点108℃、酸価60)60重量%の組成物
6. 本発明の組成物(7) テトラプロピレンペンタミン(1モル)とオレイン酸(2モル)との反応により得られたジイミダゾリン化合物25重量%と酸化ポリエチレンワックス(分子量3,500、軟化点115℃、酸価25)75重量%の組成物
7. 本発明の組成物(8) ヘプタエチレンオクタミン(1モル)とオレイン酸(4モル)との反応により得られたテトラアミド化合物5重量%と酸化ポリエチレンワックス(分子量4,500、軟化点105℃、酸価15)95重量%の組成物

【0018】〈実施例〉

1. 剥離防止効果の測定

本発明の効果を確認するために、アスファルト舗装要綱
(日本道路公団発行)記載のアスファルト皮膜の剥離試験方法、粗骨材と舗装用石油アスファルトの接着性についての静的評価方法に準じて試験を行った。13mmフルイを通過し9.5mmフルイに止まる粒度の愛知県産安山岩、長野県産花崗岩および大船渡産石灰岩各100gを採取し良く洗浄した後、300mlの金属製容器に入れ110℃の温度で一定量になるまで乾燥させる。次いで予め150℃に保った恒温乾燥器に入れて1時間加熱し試験用碎石を得る。一方、熔融した石油アスファルト(針入度60～80)に前記合成例で得た本発明の組成物を添加し混合した後、180℃の恒温乾燥器の中で所定時間(24時間及び144時間)加熱する。次いで加熱処理物の5.5gを前記で得た碎石に加え、アスファルトが完全に碎石表面を被覆するように1.5～2分

間激しくかき混ぜ、剥離防止性評価用試料を作製する。作製した試料を80℃に保った恒温水槽に30分間浸漬したのち、水槽から引き上げて直ちに水道水で冷却する。次いで、浸漬処理後の試料のアスファルト被膜の剥離状態を、剥離面積率の標本写真を参考にして1個ずつ5%刻みに観察する。剥離面積率は肉眼判定で、試料20個の剥離面積率の平均を少数第1位を四捨五入し表す(但し、うすい半透明の部分は皮膜されていないものとする)。

【0019】2. 実施例1～実施例13

前記剥離防止効果の測定方法に従い、本発明の組成物(1)～本発明の組成物(8)を添加した場合の試料の剥離面積率を求め、実施例1～実施例13を得た。結果を表2に記載したが、本発明の組成物を添加したアスファルト組成物は骨材から殆ど剥離していない。

【0020】

【表2】

剥離防止効果の評価結果

		添加物	添加量 wt%	所定時間加熱後の剥離面積 (%)					
				安山岩		花崗岩		石灰岩	
				24h	144h	24h	144h	24h	144h
実施例	実施例 1	本発明の組成物 (1)	0.05	5	5	0	5	5	10
	実施例 2	本発明の組成物 (1)	0.3	0	0	0	0	0	5
	実施例 3	本発明の組成物 (2)	0.2	0	5	0	5	0	5
	実施例 4	本発明の組成物 (2)	0.3	0	0	0	5	0	5
	実施例 5	本発明の組成物 (3)	0.3	0	5	0	0	0	5
	実施例 6	本発明の組成物 (3)	1.0	0	0	0	0	0	0
	実施例 7	本発明の組成物 (4)	0.3	0	5	0	5	0	0
	実施例 8	本発明の組成物 (4)	3.0	0	0	0	0	0	0
	実施例 9	本発明の組成物 (5)	0.3	0	5	0	5	0	5
	実施例 10	本発明の組成物 (5)	5.0	0	0	0	0	0	0
	実施例 11	本発明の組成物 (6)	0.3	0	0	0	0	0	0
	実施例 12	本発明の組成物 (7)	0.5	0	0	0	0	0	0
	実施例 13	本発明の組成物 (8)	0.3	0	5	0	5	0	5
比較例	比較例 1	本発明外の化合物 (1)	0.5	60	55	55	55	50	50
	比較例 2	本発明外の化合物 (1)	1.0	35	50	30	35	30	40
	比較例 3	本発明外の組成物 (1)	1.0	40	50	35	45	40	45
	比較例 4	本発明外の組成物 (2)	1.0	20	25	15	20	10	20
	比較例 5	本発明外の組成物 (3)	2.0	10	25	15	25	10	20
	比較例 6	本発明外の化合物 (2)	3.0	5	25	10	15	10	25
	比較例 7	本発明外の化合物 (3)	5.0	5	20	10	20	15	20
	比較例 8	無添加	0	70	70	65	65	55	60

【0021】比較例 1～比較例 8

本発明外の比較化合物および比較組成物の作製を表 3 の如く行い、次いで実施例と同様な方法で比較化合物および比較組成物を添加した場合、また無添加の場合の試料

の剥離面積率を求め比較例 1～比較例 8 を得た。結果を表 2 中に示した。

【0022】

【表 3】

本発明外の比較化合物および本発明外の比較組成物

1. 比較化合物(1)	ヘンタエチレンヘキサミン(1モル)とオレイン酸(2モル)との反応により得られたジイミダゾリン化合物
2. 比較組成物(1)	ヘンタエチレンヘキサミン(1モル)とオレイン酸(2モル)との反応により得られたジイミダゾリン化合物50重量%とポリプロピレンワックス(分子量2,000、軟化点110℃、酸価0)50重量%の組成物
3. 比較組成物(2)	エチレンジアミン(1モル)とオレイン酸(1モル)との反応により得られたイミダゾリン化合物50重量%と酸化ポリエチレンワックス(分子量1,300、軟化点125℃、酸価20)50重量%の組成物
4. 比較組成物(3)	テトラエチレンペンタアミン(1モル)とラウリン酸(2モル)との反応により得られたジアמיד化合物97重量%と酸化ポリエチレンワックス(分子量2,500、軟化点108℃、酸価60)3重量%の組成物
5. 比較化合物(2)	牛脂アルキルプロピレンジアミン(1モル)と塩酸(2モル)による中和物
6. 比較化合物(3)	酸化ポリエチレンワックス(分子量2,500、軟化点、110℃、酸価8)

【0023】

【発明の効果】表1に示すように、本発明の組成物

(1)～本発明の組成物(8)は、歴青質に対し0.0
5～5.0重量%添加することにより、歴青質と骨材と

20 の間に極めて優れた剥離防止性を発揮させることができ、従って骨材が瀝青質と剥離することのない加熱型舗装材料を提供できる。